

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM **GEBIET DES PATENTWESENS**

REC'D 0 8 JUL 2004

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHTPCT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalls WO 38163			Anmelders oder Anwalts	WEITERES VORG	EHEN slehe Mittellung vorläufigen Prü	g über die Übe ifungsberichts	rsendung des l (Formblatt PC	Internationalen Г/IPEA/416)
				•	datum (TagMonatUahr)	r) Prioritätsdatum (TagMonatUahr) 17.07.2002		
PCT/EP 03/07725				16.07.2003				
			entklassifikation (IPK) oder	nationale Klassifikation u	nd IPK			
וטא	M4/6	U	·	•				
							•	
Anm	elder							
GAI	A AK	KUM	ULATORENWERKE	GMBH et al.				
1.			ernationale vorläufige Pr				ıfigen Prüfunç	3
	beau	uttragi	en Behörde erstellt und	wird dem Anmelder ge	mäi3 Artikel 36 übermit	telt.		
							•	
2.	Dies	er BE	RICHT umfaßt insgesar	nt 5 Blätter einschließl	ch dieses Deckblatts.		•	
	_							
	⊠:		erdem liegen dem Beric bder Zeichnungen, die g					
		Beh	örde vorgenommenen B					
		PCT						
	Dies	e Anl	agen umfassen insgesal	mt 11 Blätter.		EPO - I	OG 1	
					· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·			- · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
						23. 09.	2004	
3.	Dies	er Be	richt enthält Angaben zu	folgenden Punkten:				
	1	\boxtimes	Cauadlaga dan Basaka	:		(36))	
			Grundlage des Besche	eias				
	H		Priorität	eias		<u> </u>)	
	() ())		Priorität	Gutachtens über Neut	eit, erfinderische Tätig	kelt und gew) rerbliche Anw	endbarkeit
	••	_	Priorität	Gutachtens über Neut	eit, erfinderische Tätig	kelt und gew) remiliche Anw	endbarkeit
	m		Priorität Keine Erstellung eines Mangelnde Einheitlichl Begründete Feststellur	Gutachtens über Neut) hinsichtlich der Neuh	eit, der erfind	lerischen Tätl	
	III IV		Priorität Keine Erstellung eines Mangelnde Einheitlichl Begründete Feststellur	Gutachtens über Neut kelt der Erfindung ng nach Regel 66.2 a)ii barkeit; Unterlagen und) hinsichtlich der Neuh	eit, der erfind	lerischen Tätl	
	iii IV V		Priorität Keine Erstellung eines Mangelnde Einheitlichl Begründete Feststellur gewerblichen Anwend Bestimmte angeführte	Gutachtens über Neut kelt der Erfindung ng nach Regel 66.2 a)ii barkeit; Unterlagen und) hinsichtlich der Neuh Erklärungen zur Stütz	eit, der erfind	lerischen Tätl	
•	III IV V		Priorität Keine Erstellung eines Mangelnde Einheitlich! Begründete Feststellur gewerblichen Anwend! Bestimmte angeführte Bestimmte Mängel der	Gutachtens über Neut keit der Erfindung ng nach Regel 66.2 a)li barkeit; Unterlagen und Unterlagen) hinsichtlich der Neuhe Erklärungen zur Stütz dung	eit, der erfind	lerischen Tätl	
	III IV V VI VII		Priorität Keine Erstellung eines Mangelnde Einheitlich! Begründete Feststellur gewerblichen Anwend! Bestimmte angeführte Bestimmte Mängel der	Gutachtens über Neuf keit der Erfindung ng nach Regel 66.2 a)ii barkeit; Unterlagen und Unterlagen internationalen Anmel) hinsichtlich der Neuhe Erklärungen zur Stütz dung	eit, der erfind	lerischen Tätl	
	III IV V VI VII		Priorität Keine Erstellung eines Mangelnde Einheitlich! Begründete Feststellur gewerblichen Anwend! Bestimmte angeführte Bestimmte Mängel der	Gutachtens über Neuf keit der Erfindung ng nach Regel 66.2 a)ii barkeit; Unterlagen und Unterlagen internationalen Anmel) hinsichtlich der Neuhe Erklärungen zur Stütz dung	eit, der erfind	lerischen Tätl	
Datu	III IV V VI VIII		Priorität Keine Erstellung eines Mangelnde Einheitlich! Begründete Feststellur gewerblichen Anwend! Bestimmte angeführte Bestimmte Mängel der	Gutachtens über Neuf keit der Erfindung ng nach Regel 66.2 a)ii barkeit; Unterlagen und Unterlagen internationalen Anmel) hinsichtlich der Neuhe Erklärungen zur Stütz dung	eit, der erfind ung dieser F	lerischen Täti eststellung	
	III IV V VI VIII VIII	□ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □	Priorität Keine Erstellung eines Mangelnde Einheitlichl Begründete Feststellur gewerblichen Anwendl Bestimmte angeführte Bestimmte Mängel der Bestimmte Bemerkung	Gutachtens über Neuf keit der Erfindung ng nach Regel 66.2 a)ii barkeit; Unterlagen und Unterlagen internationalen Anmel) hinsichtlich der Neuho Erklärungen zur Stütz dung Anmeldung	eit, der erfind ung dieser F	lerischen Täti eststellung	
	III IV V VI VIII	□ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □	Priorität Keine Erstellung eines Mangelnde Einheitlichl Begründete Feststellur gewerblichen Anwendl Bestimmte angeführte Bestimmte Mängel der Bestimmte Bemerkung	Gutachtens über Neuf keit der Erfindung ng nach Regel 66.2 a)ii barkeit; Unterlagen und Unterlagen internationalen Anmel) hinsichtlich der Neuho Erklärungen zur Stütz dung Anmeldung	eit, der erfind ung dieser F	lerischen Täti eststellung	
16.0	VI VII VIII VIII VIII VIII	□ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □	Priorität Keine Erstellung eines Mangelnde Einheitlichl Begründete Feststellun gewerblichen Anwendl Bestimmte angeführte Bestimmte Mängel der Bestimmte Bemerkung	Gutachtens über Neuf keit der Erfindung ng nach Regel 66.2 a)ii barkeit; Unterlagen und Unterlagen internationalen Anmel gen zur internationalen	hinsichtlich der Neuhr Erklärungen zur Stütz dung Anmeldung Datum der Fertigstellun 07.07.2004	eit, der erfind ung dieser F	lerischen Täti eststellung	
16.0	VI VII VIII VIII VIII VIII	Einreid Postan Beh	Priorität Keine Erstellung eines Mangelnde Einheitlichl Begründete Feststellungewerblichen Anwendl Bestimmte angeführte Bestimmte Mängel der Bestimmte Bemerkung chung des Antrags	Gutachtens über Neuf keit der Erfindung ng nach Regel 66.2 a)ii barkeit; Unterlagen und Unterlagen internationalen Anmel gen zur internationalen) hinsichtlich der Neuh Erklärungen zur Stütz dung Anmeldung	eit, der erfind ung dieser F	lerischen Täti eststellung	
16.0	III IV V VI VIII VIII	D Signature Sign	Priorität Keine Erstellung eines Mangelnde Einheltlichl Begründete Feststellungewerblichen Anwendl Bestimmte angeführte Bestimmte Mängel der Bestimmte Bemerkung chung des Antrags aschrift der mit der internati örde ropäisches Patentamt	Gutachtens über Neuf keit der Erfindung ng nach Regel 66.2 a)ii barkeit; Unterlagen und Unterlagen internationalen Anmel gen zur internationalen	hinsichtlich der Neuh Erklärungen zur Stütz dung Anmeldung Datum der Fertigstellun 07.07.2004 Bevollmächtigter Bedlei	eit, der erfind ung dieser F	lerischen Täti eststellung	
16.0 Nam	III IV V VI VIII VIII	Einreid O4 Postarn Beh Eu	Priorität Keine Erstellung eines Mangelnde Einheitlichl Begründete Feststellungewerblichen Anwendl Bestimmte angeführte Bestimmte Mängel der Bestimmte Bemerkung chung des Antrags	Gutachtens über Neuf keit der Erfindung ng nach Regel 66.2 a)li barkeit; Unterlagen und Unterlagen internationalen Anmel gen zur internationalen	hinsichtlich der Neuhr Erklärungen zur Stütz dung Anmeldung Datum der Fertigstellun 07.07.2004	eit, der erfind ung dieser F	lerischen Täti eststellung	

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP 03/07725

•	Grui	rundlage des Berichts						
۱.	Auffe	Hinsichtlich der Bestandteile der internationalen Anmeldung (Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigefügt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)):						
	Bes	chreibung, Seiten						
	1, 2,	8-17	in der ursprünglich eingereichten Fassung					
	3-7		eingegangen am 28.06.2004 mit Schreiben vom 28.06.2004					
	Ans	prüche, Nr.						
	1-32	!	eingegangen am 28.06.2004 mit Schreiben vom 28.06.2004					
2.	Hinsichtlich der Sprache : Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.							
		Bestandteile standen ereicht; dabei handel	der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache tes sich um:					
		die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).						
	ο,	die Veröffentlichungs	sprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).					
		die Sprache der Übe worden ist (nach Reg	rsetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht gel 55.2 und/oder 55.3).					
3.	Hins inter	sichtlich der in der inte mationale vorläufige l	ernationalen Anmeldung offenbarten Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz ist di Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:	е				
		in der internationaler	Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.					
		zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.						
		bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.						
		bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.						
		Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.						
		Die Erklärung, daß o Sequenzprotokoll er	lie in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen itsprechen, wurde vorgelegt.					
4.	Auf	grund der Änderunge	n sind folgende Unterlagen fortgefallen:					
		Beschreibung,	Seiten:	-				
		Ansprüche,	Nr.:					
		Zeichnungen,	Blatt:					
			·					

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP 03/07725

5. Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen.)

- 6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:
- V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- 1. Feststellung

Neuheit (N)

Ja: Ansprüche 1-32

Nein: Ansprüche

Erfinderische Tätigkeit (IS)

Ja: Ansprüche 1-32

Nein: Ansprüche

Gewerbliche Anwendbarkeit (IA)

Ja: Ansprüche: 1-32

Nein: Ansprüche:

2. Unterlagen und Erklärungen:

siehe Beiblatt

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT - BEIBLATT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP 03/07725

Zu Punkt V

Begründete Feststellung nach Regel 66.2(a)(ii) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

Es wird auf die folgenden Dokumente verwiesen (Siehe prinzipiell die im Recherchenbericht genannten Dokumente und Stellen):

D1: US-A-5824120 D2: EP-A-0774472

- Die vorliegende Anmeldung erfüllt die Erfordemisse des Artikels 33(1) bis (3) 2. PCT. Der Gegenstand der Ansprüche ist neu im Sinne des Artikels 33(2) und beruht auf einer erfinderischen Tätigkeit im Sinne von Artikel 33(3) PCT.
- Dokument D1 wird als nächstliegender Stand der Technik angesehen wird. D1 3. offenbart einen Haftvermittler, von dem sich der Gegenstand des Anspruchs 1 lediglich dadurch unterscheidet, daß die Dispersion kein Amin- oder Ammoniumsalz einer Perfluocarbonsäure enthält. Die Dispersion kann wie in der Anmeldung wässerig sein. Der Haftvermittler gemäß D1 wird zur Herstellung von Elektroden benutzt, die im Sekundären Batterien angewendet werden. Die Zusammensetzungen von Kathoden und Anoden, die elektrisch leitfähigen Material, die Struktur der Elektroden und/oder der Sekundärbatterien sind übliche Maßnahmen. Damit ist der Gegenstand der unabhängigen Ansprüche 1, 18, 29 und 31 neu gegenüber D1.

D2 offenbart die Vorbereitung von wässerigen Fluorpolymerdispersionen. In dieser Dispersionen werden perfluorierte Emulgatoren zugesetzt. Die Anwesenheit eines elektrisch leitfähigen Materials wird nicht erwähnt. Bevorzugt sind Amin- und Ammoniumsalze gemäß Anspruch 1 der Anmeldung. D2 beschreibt keinen Haftvermittler. Der Gegenstand des Anspruchs 1 ist auch neu gegenüber D1. Die Fluoropolymerdispersionen von D2 werden nicht zur Herstellung von Elektroden oder von Batterien verwendet.

Die Aufgabe der Anmeldung ist dié Verbesserung der Haftung der Elektrodenmasse auf den Aromkollektoren, so daß beim Entlade-/Belade-Prozeß der Batterie nicht schon nach wenigen Zyklen ein deutliches Versagensverhalten

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT - BEIBLATT

6

Internationales Aktenzeichen PCT/EP 03/07725

auftritt (Anmeldung: Seite 3, Zeilen 8-21).

Diese Aufgabe wird die Zugabe von einem Amin- oder Ammoniumsalz gelöst. Diese Lösung ist aus D1 nicht zu entnehmen. Der Fachmann wurde die Lehre von D2 zur Lösung der Aufgabe der Anmeldung nicht betrachten, da dieses Dokument sich auf die Bereitstellung von Fluorkautschken bezieht (Seite 2, Zeilen 34-35) und keinen Hinweis auf die Verwendung von Amin- oder Ammoniumsalzen zur Herstellung von Haftvermittlern. Damit kann die erfinderische Tätigkeit des Gegenstands der unabhängigen Ansprüche 1, 18, 29 und 31 anerkannt werden.

Ein direkter Vergleich zwischen den Ergebnissen des Beispiels 1 und des Vergleichsbeispiels 1 zum Nachweis der erfinderischen Tätigkeit scheint nicht zweckmäßig zu sein, weil unterschiedliche Polymere wurden in diesen Beispielen verwendet, so daß die zu vergleichen Zusammensetzungen der Haftvermittler nicht nur durch die Entfernung des Amin- oder Ammoniumsalzes sich unterscheiden.



Anlage EP0307725 PCT-Anmeldenummer: PCT7EP0370777 Anmelder: GAIA Akkumulatorenwerke Gmb Unser Zeichen: WO 3816

Alle bisher beschriebenen Haftvermittler zeigen jedoch bei der Haftung von aktiven Anodenmassen auf Basis von interkalationsfähigen Kohlenstoffen bzw. von aktiven Kathodenmassen auf Basis von Übergangsmetalloxiden mit interkaliertem Li bei der Haftung auf Kupfer- bzw. vor allem Aluminium-Stromkollektoren gravierende Nachteile.

Die Haftung ist entweder gar nicht gegeben oder aber so unzureichend, dass beim Entlade-/Belade-Prozeß der Batterie schon nach wenigen Zyklen ein deutliches Versagensverhalten auftritt und das System nicht markttauglich ist.

Somit ist es eine Aufgabe der vorliegenden Erfindung, die Haftung von aktiven Elektrodenmassen auf herkömmlichen

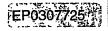
Stromkollektoren und insbesondere Kupfer- oder AluminiumStromkollektoren zu verbessern. Eine weitere Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es, Elektroden und Sekundärbatterien bereitzustellen, deren aktive Elektrodenmassen auf herkömmlichen Stromkollektoren und insbesondere Kupfer- oder Aluminium-Stromkollektoren eine verbesserte Haftung aufweisen.

Diese Aufgabe kann durch einen Haftvermittler gemäß
Anspruch 1, sowie durch eine verbesserte Elektrode und
25 Sekundärbatterie gemäß den Ansprüchen 18 beziehungsweise
29, und ein neues Herstellungsverfahren für verbesserte
Elektroden gemäß Anspruch 31 gelöst werden.

Weitere Gesichtspunkte, Vorteile und Effekte der
vorliegenden Erfindung werden durch bevorzugte
Ausführungsformen der Haftvermittler, Elektroden,
Sekundärbatterien beziehungsweise durch bevorzugte
Herstellungsverfahren für Elektroden gemäß den abhängigen
Patentansprüche gelöst.

<u>ाक्रमान्य के प्रश्निमान्य अध्यक्षिण स्थ</u>





Im folgenden werden bevorzugte Ausführungsformen der erfindungsgemäßen Haftvermittler, Elektroden und Sekundärbatterien, sowie des erfindungsgemäßen Herstellungsverfahrens für Elektroden beschrieben.

Der erfindungsgemäße elektrisch leitfähige Haftvermittler umfasst ein wässrig dispergiertes Fluorpolymeres, ein leitfähiges Material und ein Amin- oder Ammoniumsalz einer Perfluorcarbonsäure. Das eingesetzte Fluorpolymere ist vorzugsweise gegenüber den Prozessen und den Reaktionen an einer Elektrode und in einem Batteriesystem inert.

Geeignet sind Fluorpolymere, entsprechend der Literatur

15 Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, Vol. A 11,

S. 394 - 429, 1997, Verlag VCH, Weinheim, die wässrig
dispergiert vorliegen. Die eingesetzten Monomeren der
Fluorpolymere können bevorzugt, aber nicht abschließend aus
der aus Tetrafluorethylen (TFE), Hexafluorpropylen (HFP),

20 Vinylidenfluorid (VDF) und Perfluorvinylether bestehenden
Gruppe ausgewählt sein. Es ist ferner bevorzugt Copolymere
oder Terpolymere aus einem oder mehreren dieser oder auch
anderer Fluorpolymere einzusetzen. Unter anderem kann es
sich gegebenenfalls um Fluorelastomere, und insbesondere um

25 Elastomere auf Basis der vorstehenden Polymeren handeln.

In bevorzugten Ausführungsformen einsetzbare Fluorpolymere sind zum Beispiel Terpolymere aus TFE/HFP/VDF (THV),

Copolymere aus TFE/HFP (FEP) oder Perfluoroxicopolymere aus beispielsweise TFE und Perfluorvinylether (PFA). Als kommerziell erhältliche Produkte können zum Beispiel die in der Tabelle 1 genannten Fluorpolymere eingesetzt werden (Dyneon Firmenschrift (USA) 98-0504-1025 (CPI)). In der Tabelle 1 sind diese weiter bezüglich ihrem Feststoffanteil,

प्रवक्त राज्य भागानिक हरता हात्र स्टब्स स्टब्स स्टब्स





pH-Wert, Schmelzpunkt, ihrer Partikelgröße, Viskosität und den zugesetzten Additiven wie zum Beispiel Emulgatoren charakterisiert.

5 Tabelle 1

Test	Parameter	THV 340 D	THV 340 C	THV 810 D	FEPX 6300	PFAX 6910 N
ASTM D4441	Feststoff- anteil [%]	34	50	32	50	50
ASTM E70	PH ·	7	9,5	2	8.	~7
ASTM D4591	Schmelz- punkt [°C]	145	145	165	255	310
ISO 13321	Partikel- größe [nm]	90	90	90	150	235
DIN 54453	Viskosität [mPas]	20	76	21	65	21
Emul- gator		ion.	Ion.	Ion.	nicht ion.	nicht ion.

ion. = Ammoniumpentadecafluoroctanoat
nicht ion. = Copolymerisat Vinylpyrrolidon/Vinylacetat

Vorteile ergeben sich in einer bevorzugten Ausführungsform insbesondere durch die Verwendung von Fluorpolymeren mit einem Schmelzpunkt von 140 °C oder mehr, weiter bevorzugt von ungefähr 140 bis 310 °C, wie zum Beispiel bei der Verwendung der TFE/HFP/VDF-Terpolymeren Dyneon 340° und Dyneon THV 810° (hergestellt von Dyneon GmbH & Co. KG), da somit Versagensmechanismen auf Grund erhöhter Temperaturen besser ausgeschlossen werden können.

Das Fluorpolymere liegt in dem erfindungsgemäßen Haftvermittler mit einem Amin- oder Ammoniumsalz



15

20

â

EP0307725

einer Perfluorcarbonsäure in Wasser dispergiert vor.

Geeignete Perfluorcarbonsäuren können aus Mono- oder

Dicarbonsäuren ausgewählt sein, die vorzugsweise mehr als
6 C-Atome besitzen. Für die erfindungsgemäße Lösung der
Aufgabe kann beispielsweise ein aus der aus RNH2, H2NR-NH2

und R-(NH2)3 bestehenden Gruppe ausgewähltes Amin einer

Perfluorcarbonsäure in der wässrigen Dispersion eingesetzt

werden, wobei R bevorzugt für Alkyl, Aryl oder Cycloalkyl
steht.

Gegebenenfalls kann zur Dispersionsverbesserung zusätzlich ein Dispergator zu der wässrigen Dispersion des Fluorpolymeren hinzugegeben werden. Ein Beispiel eines solchen Dispergators ist ein Copolymerisat auf Basis von Vinylpyrrolidon/(Meth)acrylsäure, das wahlweise als Ammoniumsalz wässrig zur Anwendung kommt.

Die erfindungsgemäßen Haftvermittler sind mit einem leitfähigen Material versetzt, um die Kontaktleitfähigkeit zu verbessern. Die leitfähigen Materialien können aus der aus Ruß, Graphit und leitfähigen organischen Materialien, wie zum Beispiel elektrisch leitfähigen Polymeren, bestehenden Gruppe ausgewählt werden.

Weiterhin können auch noch zusätzliche Additive, wie MgO,
Al₂O₃, B₂O₃, H₃BO₃ und ähnliche üblicherweise verwendete
Additive in den wässrigen Haftvermittler-Dispersionen
dispergiert werden. Weitere bevorzugte Additive sind
Alizarin und andere Metallkomplexbildner, die als
Pulverabmischungen oder ammonikalischen Lösungen,
gegebenenfalls als Dispersion zur Anwendung gelangen
können. Diese zugesetzten Additive können unter anderem zur
weiteren Verbesserung der Kontaktierung dienen.





EP0307725

Vorteilhafterweise werden die Additive mikroverkapselt zugesetzt. Die Mikrokapseln können wie in Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry Vol. A16, S. 575-587 (1990), Verlag Wiley-VCH/ Weinheim, beschrieben hergestellt werden. Die Größe der Mikrokapseln beträgt bevorzugt 0,01 bis 1000 µm und weiter bevorzugt 0,1 bis 150 µm. Die Mikrokapseln können eine Polymerhülle aufweisen, die zum Beispiel PVDF umfasst. Diese ist bevorzugt 0,001 bis 100 µm und weiter bevorzugt 0,01 bis 10 µm dick. Die Menge der pro Elektrode eingesetzten Mikrokapseln liegt bevorzugt bei 0,5 bis 15 Gew.-% pro Elektrode.

Die wässrige Haftvermittler-Dispersion kann beispielsweise etwa 5 bis 50 Gew.-%, vorzugsweise 5 bis 30 Gew.-% und insbesondere 5 bis 20 Gew.-% Polymere enthalten. Weiterhin liegen die Anteile der elektrisch leitfähigen Zusätze wie Ruß, Graphit, Polyanilin, Polypyrrol oder ähnlichem bei etwa 2 bis 30 Gew.-%, vorzugsweise bei etwa 4 bis 20 Gew.-% und insbesondere bei etwa 5 bis 15 Gew.-%.

20

Falls MgO als Additiv eingesetzt wird, liegen Anteile hiervon bevorzugt bei etwa 0,5 - 5 Gew.-%.

Als nächstes werden die bevorzugten Ausführungsformen der erfindungsgemäßen Elektrode erläutert. Der grundsätzliche Aufbau einer Elektrode umfasst einen Stromkollektor, einen darauf aufgebrachten Haftvermittler und eine über den Haftvermittler mit dem Stromkollektor fest verbundene aktive Elektrodenmasse. Erfindungsgemäß wird hierfür ein erfindungsgemäßer Haftvermittler eingesetzt wie er vorstehend im Detail beschrieben worden ist.





Anlage vom 28. Juni 2004

PCT-Anmeldenummer: PCT/EP03/07725
Anmelder: GAIA Akkumulatorenwerke GmbH

Unser Zeichen: WO 38163

Neue Patentansprüche 1 bis 32

10 1. Elektrisch leitfähiger Haftvermittler zur Verbesserung der Haftung von aktiven Elektrodenmassen auf herkömmlichen Stromkollektoren

'dadurch gekennzeichnet, dass

er ein wässrig dispergiertes Fluorpolymeres, ein Amin15 oder Ammoniumsalz einer Perfluorcarbonsäure und ein
leitfähiges Material umfasst.

- Haftvermittler gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass
- 20 das Fluorpolymere ein Terpolymeres ist.
 - 3. Haftvermittler gemäß Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass

das Fluorpolymere aus der Gruppe, bestehend aus

Tetrafluorethylen (TFE), Hexafluorpropylen (HFP),

Vinylidenfluorid (VDF) und Perfluorvinylether, ausgewählt
ist.

4. Haftvermittler gemäß einem der Ansprüche 1 bis 3, 30 dadurch gekennzeichnet, dass

das Fluorpolymer, gegebenenfalls in Mischung mit dem Amin- oder Ammoniumsalz einer Perfluorcarbonsäure, einen Schmelzpunkt von größer als 140 °C hat.

35



EP03077251

5. Haftvermittler gemäß einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, dass

die Perfluorcarbonsäure eine Mono- oder Dicarbonsäure ist, die mehr als 6 C-Atome besitzt.

6. Haftvermittler gemäß einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, dass

das Amin aus der aus RNH_2 , H_2NR-NH_2 und $R-(NH_2)_3$ bestehenden Gruppe ausgewählt ist, worin R=Alkyl, Aryl, Cycloalkyl.

7. Haftvermittler gemäß einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, dass

er einen zusätzlichen Dispergator umfasst.

15

10

8. Haftvermittler gemäß einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, dass

er ein Copolymerisat auf Basis von
Vinylpyrrolidon/(Meth)acrylsäure enthält, das wahlweise als
Ammoniumsalz wässrig zur Anwendung gelangt.

9. Haftvermittler gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass

das leitfähige Material aus der aus Ruß, Graphit und leitfähigen organischen Materialien bestehenden Gruppe ausgewählt ist.

- 10. Haftvermittler gemäß einem der Ansprüche 1 bis 9, ... dadurch gekennzeichnet, dass
- die wässrige Dispersion des Haftvermittlers einen Polymeranteil von 5 50 Gew.-%, vorzugsweise 5 30 Gew.-% und insbesondere 5 20 Gew.-% umfasst.





EP0307725

11. Haftvermittler gemäß einem der Ansprüche 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, dass

die Anteile der elektrisch leitfähige Zusätze bei 2 - 30 Gew.-%, vorzugsweise bei 4 - 20 Gew.-% und insbesondere bei etwa 5 - 15 Gew.-% liegen.

12. Haftvermittler gemäß einem der Ansprüche 1 bis 11, dadurch gekennzeichnet, dass

er zusätzliche Additive, ausgewählt aus MgO, Al $_2$ O $_3$, 10 B $_2$ O $_3$, H $_3$ BO $_3$ und Alizarin, umfasst.

13. Haftvermittler gemäß Anspruch 12, dadurch gekennzeichnet, dass

der Additivanteil bezüglich von gegebenenfalls eingesetztem MgO, Al_2O_3 , B_2O_3 , H_3BO_3 und Alizarin bei 0,5 - 5 Gew.-% liegt.

- 14. Haftvermittler gemäß Anspruch 12 oder 13, wobei das Additiv mikroverkapselt vorliegt.
- 15. Haftvermittler gemäß Anspruch 14, wobei die Größe der Mikrokapseln bei 0,01 bis 1000 μm und insbesondere bei 0,1 bis 150 μm liegt.
- 25 16. Haftvermittler gemäß Anspruch 14 oder 15, wobei die Mikrokapseln eine Polymerhülle mit einer Dicke von 0,001 bis 100 µm und insbesondere von 0,01 bis 10 µm besitzen.
- 17. Haftvermittler gemäß einem der Ansprüche 14 bis 16, 30 wobei die Menge der Mikrokapseln pro Elektrode bei 0,5 bis 15 Gew.-% liegt.
 - 18. Elektrode, umfassend einen Stromkollektor, einen Haftvermittler und eine aktive Elektrodenmasse,
- 35 dadurch gekennzeichnet, dass

The second of th

The state of the s





der Haftvermittler gemäß einem der Ansprüche 1 bis 17 definiert ist.

- 19. Elektrode gemäß Anspruch 18,
- dadurch gekennzeichnet, dass

sie einen Mehrschichtaufbau aufweist.

- 20. Elektrode gemäß Anspruch 18 oder 19, dadurch gekennzeichnet, dass
- 10 die aktive Elektrodenmasse eine aktive Kathodenmasse darstellt.
- 21. Elektrode gemäß Anspruch 20, wobei die aktive
 Elektrodenmasse ein Übergangsmetalloxid, insbesondere
 Co^{III}oxid, Ni^{II}oxid, Mn^{Iv}oxid, Wolframat, Molybdat, Titanat,
 Fe^{III}phosphat, Ferrat, Chromat, umfasst.
 - 22. Elektrode gemäß Anspruch 21, wobei das Übergangsmetalloxid ein Li/Übergangsmetall-Mischoxid ist.
 - 23. Elektrode gemäß Anspruch 22, wobei das Lithium in der aktiven Kathodenmasse interkaliert vorliegt.
 - 24. Elektrode gemäß Anspruch 18 oder 19,
- 25 dadurch gekennzeichnet, dass

die aktive Elektrodenmasse eine aktive Anodenmasse darstellt.

- 25. Elektrode gemäß Anspruch 24, wobei die aktive 30 Anodenmasse aus der aus Graphit, Kohlenstoff, Ruß und Fasern bestehenden Gruppe ausgewählt ist.
 - 26. Elektrode gemäß Anspruch 24 oder 25, wobei die aktive Anodenmasse in einer interkalationsfähigen Form,
- 35 insbesondere für Lithium, vorliegt.



EP0307725

27. Elektrode gemäß einem der Ansprüche 18 bis 26, dadurch gekennzeichnet, dass

der Stromkollektor ein elektrisch leitfähiges Polymer, einen mit einem elektrisch leitfähigem Material gefüllten Kunststoff oder ein Metall umfasst.

- 28. Elektrode gemäß einem der Ansprüche 18 bis 27, dadurch gekennzeichnet, dass
- der Stromkollektor in Form von einer Folie, Faser, einem Vlies oder Netz ausgebildet ist.
 - 29. Sekundärbatterie, umfassend wenigstens eine Anode und eine Kathode, und wenigstens einen Separator,
- 15 dadurch gekennzeichnet, dass

wenigstens eine Elektrode gemäß einem der Ansprüche 18 bis 28 definiert ist.

- 30. Sekundärbatterie gemäß Anspruch 29, wobei die Batterie 20 eine Lithium- oder Lithium-Polymer-Batterie ist.
 - 31. Verfahren zur Herstellung einer Elektrode, umfassend einen Stromkollektor, einen Haftvermittler und eine aktive Elektrodenmasse,
- 25 dadurch gekennzeichnet, dass

30

es die folgenden Schritte umfasst:

Bereitstellen einer wässrigen Dispersion eines
Haftvermittlers gemäß einem der Ansprüche 1 bis 17;

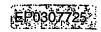
Herstellen einer Mischung der wässrigen Dispersion mit der aktiven Elektrodenmasse;

Aufbringen der Mischung auf eine Oberfläche eines Stromkollektors; und

Trocknen der aufgebrachten Mischung.







32. Verfahren gemäß Anspruch 31, umfassend zusätzlich den Schritt des Entfettens des Stromkollektors vor dem Schritt des Aufbringens der wässrigen Dispersion des Haftvermittlers.

This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:	
☐ BLACK BORDERS	
☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES	
☐ FADED TEXT OR DRAWING	
BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING	
☐ SKEWED/SLANTED IMAGES	
COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS	
☐ GRAY SCALE DOCUMENTS	
LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT	
☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY	

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

☐ OTHER:

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.